

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
11. Januar 2001 (11.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/02635 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: D04H 1/42, 1/56

MCNALLY, Donald [US/US]; 62 Mountain Avenue,  
Chatham, NJ 07928 (US).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/05760

(22) Internationales Anmeldedatum:  
21. Juni 2000 (21.06.2000)

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AU,  
AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CR, CU, CZ, DM, DZ,  
EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KG, KP, KR, KZ,  
LC, LK, LR, LT, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MX, MZ,  
NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA,  
US, UZ, VN, YU, ZA.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
199 30 979.5 5. Juli 1999 (05.07.1999) DE

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eura-  
sisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),  
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,  
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent  
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,  
SN, TD, TG).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): TICONA GMBH [DE/DE]; An der B 43, D-65451  
Kelsterbach (DE).

**Veröffentlicht:**

— Mit internationalem Recherchenbericht.

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): JACOBS, Alexandra  
[DE/DE]; Königsberger Strasse 14, D-65527 Niedern-  
hausen (DE). HATKE, Wilfried [DE/DE]; Am Waldeck  
42a, D-65779 Kelkheim (DE). LAMONTE, Ronald,  
R. [US/US]; 8 Patrick Court, Flanders, NJ 07836 (US).

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen  
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on  
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe  
der PCT-Gazette verwiesen.



WO 01/02635 A1

(54) Title: METHOD OF PRODUCING MICROFIBER NONWOVENS THAT CONTAIN CYCLOOLEFIN POLYMERS

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON MIKROFASERVLISEN ENTHALTEND CYCLOOLEFINPOLYMERE

(57) Abstract: The invention relates to a method of producing microfiber nonwovens that contain at least one cycloolefin polymer by means of a melt-blow method. The invention also relates to articles produced according to this method and to their use.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Mikrofaservliesen enthaltend mindestens ein Cycloolefinpolymer durch das Schmelzblas- (Melt blown-) Verfahren, die nach diesem Verfahren hergestellten Artikel sowie deren Verwendung.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## Beschreibung

### Verfahren zur Herstellung von Mikrofaservliesen enthaltend Cycloolefinpolymere

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von  
5 Mikrofaservliesen enthaltend Cycloolefinpolymere sowie die Verwendung der Mikrofaservliese.

EP 594 123 beschreibt Mikrofaservliese im Elektretzustand, die acyclische Polyolefine, bevorzugt Polypropylen, enthalten und durch Melt blown-Verfahren hergestellt wurden.

- 10 Aus EP 705 931 sind Vliese aus Elektretfasermischungen bekannt, die für den Einsatz als Filtermaterialien gezielt, z.B. in einer Coronaentladung, elektrostatisch aufgeladen werden und zur Erhöhung der Ladungsstabilität Ladungssteuerungsmittel aufweisen.

- 15 Aus WO 98/56836 sind Elektrete auf der Basis von Cycloolefincopolymeren bekannt, die sich durch eine langfristige Stabilität der aufgetragenen Ladungen auch bei hohen Temperaturen und hoher relativer Luftfeuchtigkeit auszeichnen. Es sind auch Mischungen mit Polyolefinen, wie z.B. Polypropylen beschrieben.

Verfahren zur Herstellung von Mikrofaservliesen durch das Melt blown-Verfahren sind in US 3,978,185, in US 3,972,759 sowie in US 4,622,259 beschrieben.

- 20 Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung liegt darin, ein wirtschaftliches und umweltfreundliches Verfahren zur Herstellung von Mikrofaservliesen, die Cycloolefinpolymere enthalten, bereitzustellen. Das erfindungsgemäße Verfahren wird im folgenden detailliert beschrieben.

- 25 Erfindungsgemäß werden Mikrofaservliese, die Cycloolefinpolymere enthalten, durch ein Schmelzblas- (Melt blown-)Verfahren hergestellt. Das erfindungsgemäße Melt blown-Verfahren resultiert in Mikrodenier-Fasern mit Durchmessern von 0,1 bis

20µm, bevorzugt 0,5 bis 7 µm. Die durch das Melt blown-Verfahren hergestellten Fasern sind damit ca. eine Größenordnung kleiner als der kleinste Durchmesser von Fasern, die durch das Spunbond-Verfahren hergestellt werden. Das Spunbond-Verfahren ist ebenfalls grundsätzlich für die Herstellung von Mikrofaservliesen, die Cycloolefinpolymere enthalten, geeignet, kommt aber aufgrund der anderen Fasercharakteristik, z.B. Faserdurchmesser, für die Herstellung anderer Vliesqualitäten zum Einsatz.

Beim Melt blown-Verfahren wird das faserbildende Cycloolefinpolymer in einem Extruder aufgeschmolzen und auf die geeignete Temperatur gebracht und durch eine Anordnung einer Vielzahl von Extrusionsdüsen in einen heißen Luftstrom von hoher Geschwindigkeit extrudiert. Durch den heißen Luftstrom werden die Schmelzeströme so verdünnt, daß Fasern im Mikrodenier-Bereich entstehen. Die Düsenanordnung ist im allgemeinen eine lineare Anordnung von Kapillaren mit kleinem Durchmesser. Typische Düsendurchmesser liegen bei 0,25 bis 0,5 Millimetern. Auf die durch die Düsen extrudierten Schmelzestränge trifft von beiden Seiten der Luftstrom auf. Der Luftstrom kann eine Temperatur von 100 bis 300°C haben. Die Umgebungsluft, die in den heißen Luftstrom gesogen wird, führt zu einer Abkühlung und Verfestigung des Schmelzestromes zu den Fasern.

Die Extrusionsbedingungen sowie die Temperatur und Geschwindigkeit des Luftstromes können an das Fließverhalten des Cycloolefinpolymers angepaßt werden, um eine Optimierung des Prozeßablaufes bzw. der Vliesqualität zu erreichen.

Die Fasern werden auf ein Transportband als Vlies abgelegt. Die Verwirrung der Fasern und die Faser-Faser-Kohäsion führt zu einer ausreichenden Festigkeit des Vlieses, um dieses ohne weitere Verfestigung zu verwenden.

Darüber hinaus kann eine zusätzliche Verfestigung prinzipiell in jeder bekannten Weise erfolgen. So ist es beispielsweise möglich, das Vlies durch einen Binder zu verfestigen, mit dem das Vlies imprägniert wird und der anschließend ausgehärtet wird, oder der Binder kann ein Schmelzbinder sein, der z.B. in Pulverform oder in

Form von Binderfäden in das Vlies eingearbeitet wird, und der das Vlies unter Wärmeeinwirkung zum Vliesstoff verfestigt.

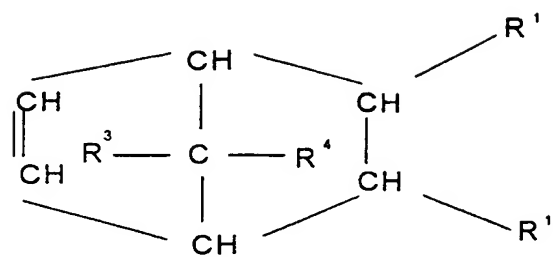
Das Vlies kann auch mechanisch verfestigt werden, z.B. durch das Nadeln oder durch hydromechanische Verfestigung, wie sie z.B. in EP-A-0 108 621 beschrieben ist. Eine Kombination der verschiedenen Verfestigungen kann nach Bedarf ebenfalls erfolgen.

Die Fasern können, statt auf ein Transportband abgelegt zu werden, auch auf ein Spinnfaservlies abgelegt werden und gegebenenfalls anschließend thermisch verfestigt und verbunden werden. Auf diese Weise können auch Sandwich-Konstruktionen verschiedener Vliese hergestellt werden.

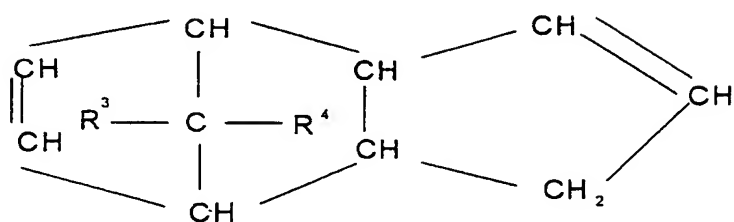
Für die Herstellung von Mikrofaservliesen nach dem erfindungsgemäßen Verfahren wird mindestens ein Cycloolefinpolymer eingesetzt, welches polymerisierte Einheiten enthält, die sich von mindestens einem cyclischen, insbesondere polycyclischen Olefin und gegebenenfalls von mindestens einem acyclischen Olefin ableiten.

Der Begriff Cycloolefinpolymer umfaßt Cycloolefincopolymere wie auch Cycloolefinhomopolymere.

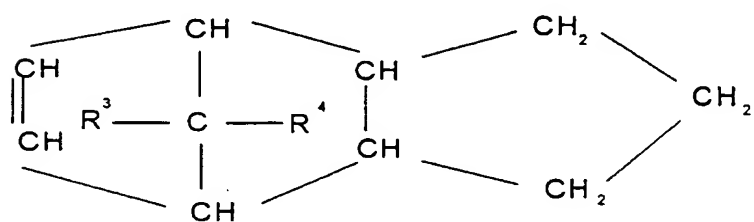
Für die Herstellung von Mikrofaservliesen nach dem erfindungsgemäßen Verfahren wird mindestens ein Cycloolefinpolymer eingesetzt, enthaltend 0,1 bis 100 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 99,9 Gew.-%, besonders bevorzugt 3 bis 75 mol% bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymers, polymerisierte Einheiten, welche sich ableiten von mindestens einem polycyclischen Olefin der Formeln I, II, II', III, IV, V oder VI



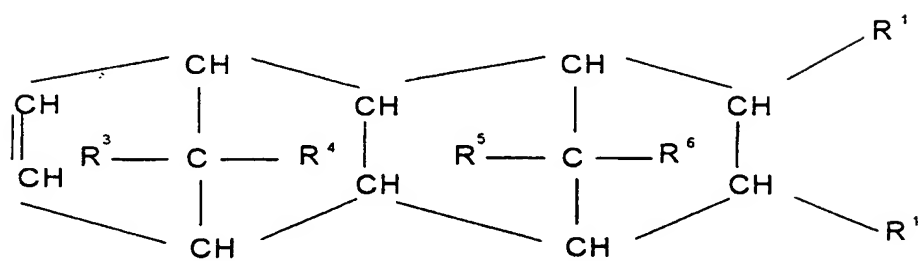
(I),



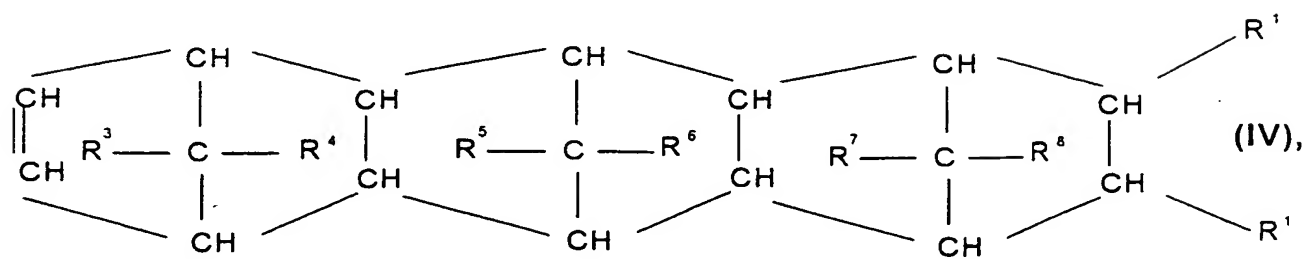
(II),



(II'),

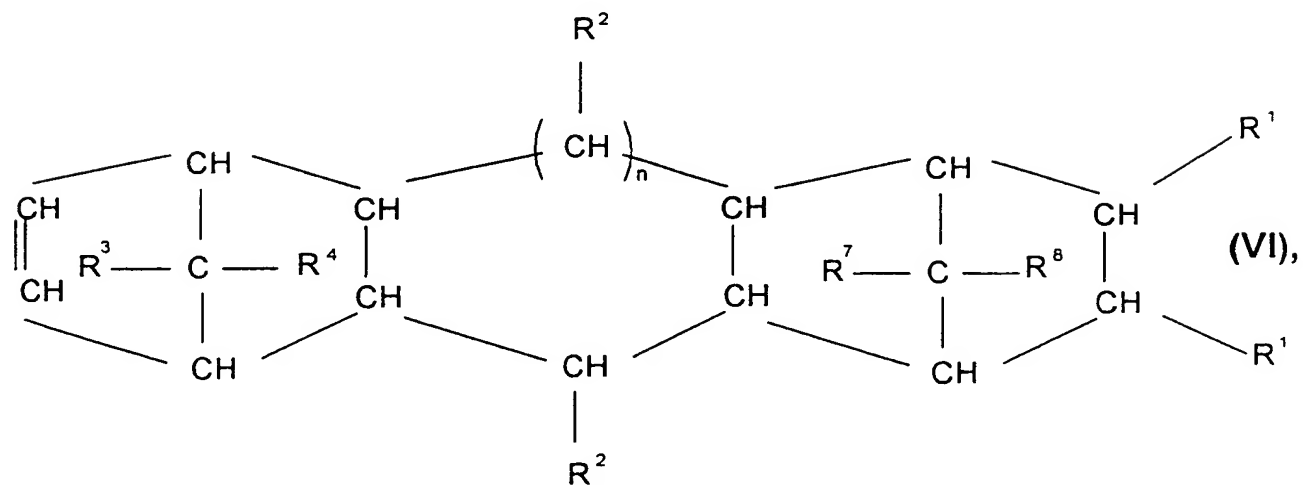
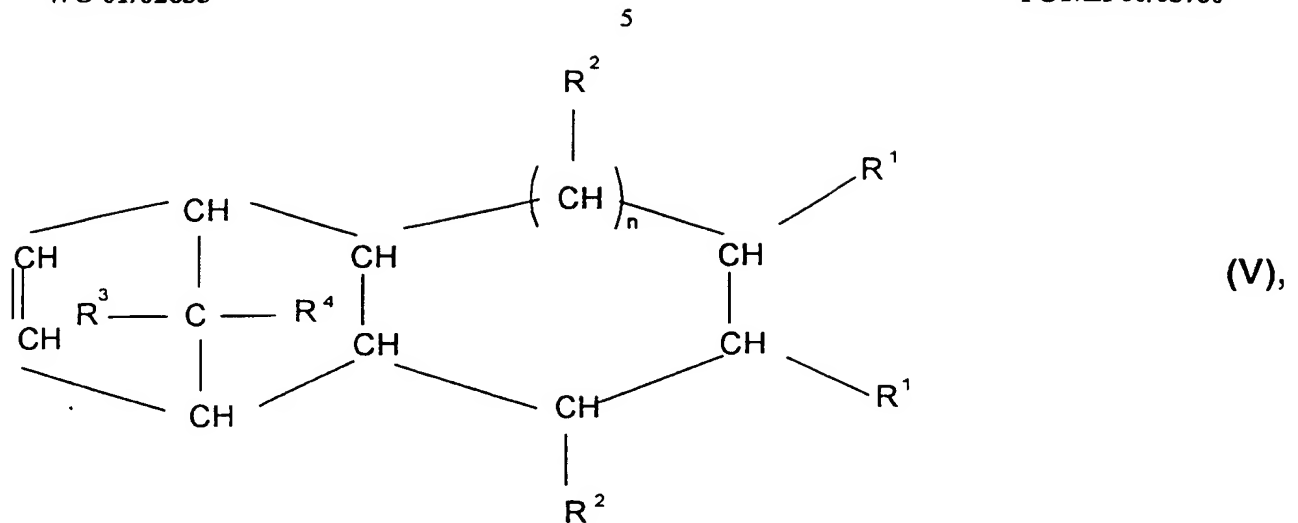


(III),



(IV),





worin  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$  und  $R^8$  gleich oder verschieden sind und ein Wasserstoffatom oder einen  $C_1$ - $C_{20}$ -Kohlenwasserstoffrest, wie einen linearen oder verzweigten  $C_1$ - $C_8$ -Alkylrest,  $C_6$ - $C_{18}$ -Arylrest,  $C_7$ - $C_{20}$ -Alkylenarylrest, einen cyclischen oder acyclischen  $C_2$ - $C_{20}$ -Alkenylrest bedeuten, oder einen gesättigten, ungesättigten oder aromatischen Ring bilden, wobei gleiche Reste  $R^1$  bis  $R^8$  in den verschiedenen Formeln I bis VI eine unterschiedliche Bedeutung haben können, worin  $n$  Werte von 0 bis 5 annehmen kann, und enthaltend 0 bis 99,9 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 99,9 Gew.-%, besonders bevorzugt 5 bis 80 mol% bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymers, polymerisierte Einheiten, welche sich ableiten von einem oder mehreren acyclischen Olefinen der Formel VII



worin  $R^9$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  und  $R^{12}$  gleich oder verschieden sind und ein Wasserstoffatom, einen linearen, verzweigten, gesättigten oder ungesättigten  $C_1$ - $C_{20}$ -Kohlenwasserstoffrest wie einen  $C_1$ - $C_8$ -Alkylrest oder einen  $C_6$ - $C_{18}$ -Arylrest bedeuten.

Bei den cyclischen Olefinen eingeschlossen sind ebenfalls Derivate dieser cyclischen Olefine mit polaren Gruppen wie Halogen-, Hydroxyl-, Ester-, Alkoxy-, Carboxy-, Cyano-, Amido-, Imido- oder Silylgruppen.

Außerdem können die erfindungsgemäß für die Herstellung von Mikrofaservliesen eingesetzten Cycloolefinpolymere 0 bis 45 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymers, polymerisierte Einheiten enthalten, welche sich ableiten von einem oder mehreren monocyclischen Olefinen der Formel VIII



worin  $m$  eine Zahl von 2 bis 10 ist.

Bevorzugt im Sinne der Erfindung sind Cycloolefinpolymere, die polymerisierte Einheiten enthalten, welche sich ableiten von polycyclischen Olefinen der Formeln I oder III, und polymerisierte Einheiten, welche sich ableiten von acyclischen Olefinen der Formel VII.

Besonders bevorzugt sind Cycloolefinpolymere, die polymerisierte Einheiten enthalten, welche sich ableiten von Olefinen mit Norbornengrundstruktur, ganz besonders bevorzugt von Norbornen und Tetracyclododecen und gegebenenfalls

Vinylnorbornen oder Norbornadien. Besonders bevorzugt sind auch Cycloolefinpolymere, die polymerisierte Einheiten enthalten, welche sich ableiten von acyclischen Olefinen mit endständigen Doppelbindungen wie  $\alpha$ -Olefinen mit 2 bis 20 C-Atomen, ganz besonders bevorzugt Ethylen oder Propylen. Außerordentlich  
5 bevorzugt sind Norbornen/ Ethylen- und Tetracyclododecen/ Ethylen-Copolymere.

Die Herstellung der Cycloolefinpolymere kann durch eine heterogene oder homogene Katalyse mit metallorganischen Verbindungen geschehen, die in einer Vielzahl von Patenten beschrieben ist.

Die erfindungsgemäß verwendeten Cycloolefinpolymere können hergestellt werden  
10 bei Temperaturen von -78 bis 200 °C und einem Druck von 0,01 bis 200 bar, in Gegenwart eines oder mehrerer Katalysatorsysteme, welche mindestens eine Übergangsmetallverbindung und gegebenenfalls einen Cokatalysator und gegebenenfalls ein Trägermaterial enthalten. Als Übergangsmetallverbindungen eignen sich Metallocene, insbesondere stereorigide Metallocene. Beispiele für  
15 Katalysatorsysteme, welche für die Herstellung der erfindungsgemäßen Cycloolefinpolymere geeignet sind, sind beschrieben in EP-A-407 870, EP-A-485 893 und EP-A-503 422. Auf diese Referenzen wird hier ausdrücklich Bezug genommen.

Die Herstellung der erfindungsgemäß verwendeten Cycloolefinpolymere kann unter  
20 Verwendung eines Metallocens als Übergangsmetallverbindung und einem Aluminoxan erfolgen

Beispiele für eingesetzte Übergangsmetallverbindungen sind:

rac-Dimethylsilyl-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
rac-Dimethylgermyl-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
25 rac-Phenylmethylsilyl-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
rac-Phenylvinylsilyl-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
1-Silacyclobutyl-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
rac-Diphenylsilyl-bis-(1-indenyl)-hafniumdichlorid,  
rac-Phenylmethylsilyl-bis-(1-indenyl)-hafniumdichlorid,  
30 rac-Diphenylsilyl-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,

- rac-Ethylen-1,2-bis-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
Dimethylsilyl-(9-fluorenyl)-(cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Diphenylsilyl-(9-fluorenyl)-(cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Bis(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
5 Diphenylmethylen-(9-fluorenyl)-cyclopentadienylzirkondichlorid,  
Isopropylen-(9-fluorenyl)-cyclopentadienyl-zirkondichlorid,  
rac-Isopropyliden-bis-(1-indenyl)zirkondichlorid,  
Phenylmethylen-(9-fluorenyl)-cyclopentadienyl-zirkondichlorid,  
Isopropylen-(9-fluorenyl)-(1-(3-isopropyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
10 Isopropylen-(9-fluorenyl)(1-(3-methyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Diphenylmethylen-(9-fluorenyl)(1-(3-methyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Methylphenylmethylen-(9-fluorenyl)(1-(3-methyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Dimethylsilyl-(9-fluorenyl)(1-(3-methyl)-cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Diphenylsilyl-(9-fluorenyl)(1-(3-methyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
15 Diphenylmethylen-(9-fluorenyl)(1-(3-tert.-butyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Isopropylen-(9-fluorenyl)(1-(3-tert.-butyl)cyclopentadienyl)-zirkondichlorid,  
Isopropylen-(cyclopentadienyl)-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
Diphenylcarbonyl-(cyclopentadienyl)-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
Dimethylsilyl-(cyclopentadienyl)-(1-indenyl)-zirkondichlorid,  
20 Isopropylen-(methylcyclopentadienyl)-(1-indenyl)-zirkondichlorid, 4-( $\eta^5$ -  
cyclopentadienyl)-4,7,7-trimethyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-tetrahydroindenyl-zirkondichlorid,  
[4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)-4,7,7-triphenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-  
tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,  
[4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)-4,7-dimethyl-7-phenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-  
25 tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,  
[4-( $\eta^5$ -3'-tert.-butylcyclopentadienyl)-4,7,7-triphenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-  
tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,  
[4-( $\eta^5$ -3'-tert.-butylcyclopentadienyl)-4,7-dimethyl-7-phenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-  
tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,  
30 [4-( $\eta^5$ -3'-methylcyclopentadienyl)-4,7,7-trimethyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-  
tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,  
[4-( $\eta^5$ -3'-methylcyclopentadienyl)-4,7,7-triphenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-  
tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -3'-methylcyclopentadienyl)-4,7-dimethyl-7-phenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -3'-isopropylcyclopentadienyl)-4,7,7-trimethyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,

5 [4-( $\eta^5$ -3'-isopropylcyclopentadienyl)-4,7,7-triphenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -3'-isopropylcyclopentadienyl)-4,7-dimethyl-7-phenyl-( $\eta^5$ -4,5,6,7-tetrahydroindenyl)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

10 [4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)-4-methyl-( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)-4-phenyl-( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)-4-phenyl-( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -3'-methyl-cyclopentadienyl)( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

[4-( $\eta^5$ -3'-isopropylcyclopentadienyl)( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

15 [4-( $\eta^5$ -3'-benzyl-cyclopentadienyl)( $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]zirkondichlorid,

[2,2,4Trimethyl-4-( $\eta^5$ -cyclopentadienyl)-(  $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]-zirkoniumdichlorid,

[2,2,4Trimethyl-4-( $\eta^5$ -(3,4-Di-isopropyl)cyclopentadienyl)-(  $\eta^5$ -4,5-tetrahydropentalen)]-zirkoniumdichlorid.

20 Die Herstellung der Cycloolefinpolymere kann auch auf anderen, nachfolgend kurz skizzierten Wegen erfolgen. Katalysatorsysteme basierend auf Mischkatalysatoren aus Titansalzen und Aluminiumorganylen werden in DD-A-109 224 und DD-A-237 070 beschreiben. EP-A-156 464 beschreibt die Herstellung mit Katalysatoren auf Vanadiumbasis. EP-A-283 164, EP-A-407 870, EP-A-485 893 und EP-A-503 422  
25 beschreiben die Herstellung von Cycloolefinpolymeren mit Katalysatoren basierend auf löslichen Metallocenkomplexen. Auf die in diesen Patenten zur Herstellung von Cycloolefinpolymeren beschriebenen Herstellungsverfahren und verwendeten Katalysatorsysteme wird hiermit ausdrücklich hingewiesen.

Die Herstellung erfindungsgemäß verwendeter Cycloolefinpolymere kann durch  
30 Homo- und/oder Copolymerisation cyclischer, bevorzugt polycyclischer Olefine unter Ringerhalt erfolgen.

Die Cycloolefinpolymere können auch durch ringöffnende Polymerisation mindestens eines der Monomere der Formeln I bis VI und anschließende Hydrierung der erhaltenen Produkte hergestellt werden. Gegebenenfalls können die

Cycloolefinpolymere auch durch ringöffnende Copolymerisation mindestens eines der Monomere der Formeln I bis VI mit weiteren, z.B. monocyclischen Monomeren der Formel VIII und anschließende Hydrierung der erhaltenen Produkte hergestellt werden. Die Herstellung der Cycloolefinpolymere ist in den japanischen Patenten 3-14882, 3-122137, 4-63807, 2-27424 und 2-276842 beschrieben. Auf die in diesen Patenten zur Herstellung von Cycloolefinpolymeren beschriebenen

Herstellungsverfahren und verwendeten Katalysatorsysteme wird hiermit ausdrücklich hingewiesen. Eingeschlossen sind ebenfalls Derivate dieser cyclischen Olefine mit polaren Gruppen, wie Halogen-, Hydroxyl-, Ester-, Alkoxy-, Carboxy-, Cyano-, Amido-, Imido- oder Silylgruppen.

Hydrierte Polymere und Copolymere, wie z.B. von Styrol und Dicyclopentadien sind ausdrücklich ebenfalls geeignet und werden im Rahmen dieser Anmeldung ebenfalls als Cycloolefinpolymere bezeichnet.

Die Polymerisation kann auch mehrstufig erfolgen, wobei auch Blockcopolymere entstehen können (DE-A-42 05 416).

Cycloolefinpolymere sind bevorzugt amorphe, transparente und farblose Werkstoffe.

Die Wärmeformbeständigkeiten der Cycloolefinpolymere lassen sich in einem weiten Bereich einstellen. Als Anhaltspunkt für die Wärmeformbeständigkeit, wie sie nach ISO 75 Teil 1 und Teil 2 an Spritzgußformkörpern bestimmt werden kann, läßt sich für Cycloolefinpolymere die Glasübergangstemperatur heranziehen. Die beschriebenen Cycloolefinpolymere weisen Glasübergangstemperaturen zwischen -50 und 220 °C auf. Bevorzugt sind Glasübergangstemperaturen zwischen 0 und 180 C, besonders bevorzugt sind Glasübergangstemperaturen zwischen 40 und 180 C.

Die mittlere Molmasse der Cycloolefinpolymere läßt sich durch Wasserstoff-Dosierung, Variation der Katalysatorkonzentration oder Variation der Temperatur in bekannter Weise steuern. Die in den nach dem erfindungsgemäßen Verfahren

hergestellten Mikrofaservliese enthaltenen Cycloolefinpolymere weisen massenmittlere Molmassen  $M_w$  zwischen 1.000 und 10.000.000 g/mol auf. Bevorzugt sind massenmittlere Molmassen  $M_w$  zwischen 5.000 und 5.000.000 g/mol, besonders bevorzugt sind massenmittlere Molmassen  $M_w$  zwischen 10.000 und 1.200.000 g/mol.

Die in den nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Mikrofaservliesen enthaltenen Cycloolefinpolymere weisen Viskositätszahlen zwischen 5 und 1.000 ml/g auf. Bevorzugt sind Viskositätszahlen zwischen 20 und 500 ml/g, besonders bevorzugt sind Viskositätszahlen zwischen 30 und 300 ml/g.

- 10 Die Verarbeitung der Cycloolefinpolymere nach dem erfindungsgemäßen Verfahren erfolgt bei Temperaturen von 50 bis 200°C oberhalb der Wärmeformbeständigkeit HDT/B (Heat distortion temperature), bevorzugt bei 80 bis 180°C oberhalb HDT/B, besonders bevorzugt bei 100 bis 160°C oberhalb HDT/B.

- 15 Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung von Mikrofaservliesen wird bevorzugt mit einem Luftstrom einer Temperatur von 70 bis 250°C oberhalb Wärmeformbeständigkeit HDT/B (Heat distortion temperature), besonders bevorzugt bei 100 bis 200°C oberhalb HDT/B, ganz besonders bevorzugt bei 120 bis 170°C oberhalb HDT/B durchgeführt.

- 20 Das Fließverhalten der für das erfindungsgemäße Verfahren eingesetzten Cycloolefinpolymere hat Einfluß auf die Verfahrensführung und die Qualität des Vlieses. Für das erfindungsgemäße Verfahren haben sich daher Cycloolefinpolymere als besonders geeignet erwiesen, die einen MVR von 1 bis 300 ml/10min, bevorzugt von 2 bis 200 ml/10min, besonders bevorzugt von 5 bis 80 ml/10min aufweisen.

- 25 Die Extrusionsbedingungen sowie die Temperatur und Geschwindigkeit des Luftstromes können an das Fließverhalten des Cycloolefinpolymers angepaßt werden, um eine Optimierung des Prozeßablaufes bzw. der Vliesqualität zu erreichen.

Das erfindungsgemäße Verfahren hat sich als besonders geeignet erwiesen, Mikrofaservliese hoher Qualität herzustellen. Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich dadurch aus, daß keine signifikanten Mengen an losen Fasern oder Faserbruchstücken entstehen, sogenanntes "fly". Diese losen Fasern oder Faserbruchstücke können in nicht erfindungsgemäßen Verfahren zu einer Störung des Prozeßablaufs und zu Defekten am Vlies führen.

Für die Herstellung von Mikrofaservliesen nach dem erfindungsgemäßen Verfahren können auch Legierungen aus mindestens einem Cycloolefinpolymer und mindestens einem weiteren Polymer in beliebigem Mischungsverhältnissen eingesetzt werden.

Für die Legierungen mit Cycloolefinpolymeren sind bevorzugt folgende Polymere einsetzbar: Polyethylen, Polypropylen, Ethylen-Propylen-Copolymere, Polybutylen, Poly(4-methyl-1-penten), Polyisopren, Polyisobutylen, Naturkautschuk, Poly(1-methylenmetacrylat), weitere Polymetacrylate, Polyacrylat, Acrylat-Metacrylat-Copolymere, Polystyrol, Styrol-Acrylnitril-Copolymer, Bisphenol-A-Polycarbonat, weitere Polycarbonate, aromatische Polyestercarbonate, Polyethylenterephthalat, Polybutylenterephthalat, amorphe Polyacrylat, Nylon - 6, Nylon - 66, weitere Polyamide, Polyaramide, Polyetherketone, Polyoxymethylen, Polyoxyethylen, Polyurethane, Polysulfone, Polyethersulfone, Polyvinylidenfluorid.

Für Legierungen von Cycloolefinpolymeren und Polyolefinen werden bevorzugt folgende Polyolefine eingesetzt: Homopolymere des Ethylens und Propylens sowie Copolymere aus diesen beiden Monomeren, Copolymere auf der Basis von Ethylen mit linearen oder verzweigten Olefinen, wie Buten, Penten, Hexen, Hepten, Octen, Nonen, Decen, Undecen und Dodecen, Copolymere auf der Basis von Propylen mit linearen oder verzweigten Olefinen, wie Buten, Penten, Hexen, Hepten, Octen, Nonen, Decen, Undecen und Dodecen, Terpolymere aus Ethylen, Propylen und linearen oder verzweigten Olefinen, wie Buten, Penten, Hexen, Hepten, Octen, Nonen, Decen, Undecen und Dodecen.

Die Herstellung der Legierungen kann durch übliche Verfahren erfolgen, z.B. durch gemeinsame Extrusion der Polymerkomponenten aus der Schmelze, gegebenenfalls



unter Verwendung weiterer Additive, und anschließende Granulierung.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann unter Verwendung von Additiven in üblichen Mengen durchgeführt werden, wie z.B. Plastifizierungsmittel, UV-Stabilisatoren, optische Aufheller, Antioxidantien, Anstistatika, Wärmestabilisatoren. Die genannten Additive  
5 können bereits vor der Verarbeitung den Polymermaterialien zugegeben worden sein oder aber während der Verarbeitung zugegeben werden.

Es hat sich gezeigt, daß die genaue Auswahl der Temperatur und Geschwindigkeit des Luftstromes merklichen Einfluß auf die Anzahl der entstehenden losen Fasern oder Faserbruchstücke hat. Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich dadurch  
10 aus, daß keine signifikanten Mengen an losen Fasern oder Faserbruchstücken entstehen, sogenanntes "fly", die sonst zu einer Störung des Prozeßablaufs und zu Defekten am Vlies führen können.

Eine besondere Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens liegt darin, die Mikrofaservliese elektrostatisch aufzuladen, z.B. durch Coronabehandlung oder  
15 durch triboelektrische Aufladung, und als elektrostatisch aufgeladene Mikrofaservliese, sogenannte Elektrete, einzusetzen.

Die durch das erfindungsgemäße Verfahren hergestellten Mikrofaservliese weisen durch eine Vielzahl sehr feiner Fasern eine Struktur mit einer sehr großen Oberfläche und kleinen Porengröße auf.

20 Die durch das erfindungsgemäße Verfahren hergestellten Mikrofaservliese zeichnen sich durch eine sehr gute Resistenz gegenüber Chemikalien und Feuchtigkeit aus sowie durch eine hervorragende langfristige Stabilität der aufgetragenen Ladungen auch bei hohen Temperaturen und hoher relativer Luftfeuchtigkeit.

Das Flächengewicht der nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten  
25 Mikrofaservliese richtet sich nach dem geplanten Einsatz und läßt sich über die Auswahl des Materials sowie der Verarbeitungsbedingungen gezielt einstellen. Das Flächengewicht der nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Mikrofaservliese liegt zwischen 1 und 300 g/m<sup>2</sup>, bevorzugt zwischen 2 und 200 g/m<sup>2</sup>,

besonders bevorzugt zwischen 5 und 50 g/m<sup>2</sup>.

Die durch das erfindungsgemäße Verfahren hergestellten Mikrofaservliese eignen sich daher für den Einsatz als Ölabsorber, als Filtermaterialien, z.B. für die Aufnahme feiner Partikel aus Gasen oder Flüssigkeiten, als Produkte im medizinischen/

5 Hospitalbereich und als Isolierungsmaterialien.

Besonders in Form der elektrostatisch aufgeladenen Mikrofaservliese eignen sich die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Mikrofaservliese als Partikelfilter im Bereich der Raumluft- und Reinraumtechnik, der Haustechnik, z.B.

als Mikrofilter in Staubsaugern, als Pkw-Innenraumfilter sowie im Bereich

10 Atemschutz, z.B. als partikelfiltrierende Atemmasken. Ein besonderer wirtschaftlicher sowie sicherheitstechnischer Aspekt ist die aufgrund der ausgezeichneten Ladungsstabilität gegebene Lebensdauer der nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Mikrofaservliese auch unter Umgebungsbedingungen von höherer Temperatur und hoher relativer Luftfeuchte.

15 Die MVR-Messungen werden nach ISO 1133 bei einer Temperatur  $T_{MVR} = HDT/B + 115^{\circ}\text{C}$  und Masse 2,16 kg durchgeführt.

Die Durchführung der Messungen zur Bestimmung der HDT erfolgt nach ISO 75, Teil 1 und 2 (0,46 MPa).

Die Erfindung wird anhand der folgenden Beispiele näher erläutert.

20

## Beispiele

### Beispiel 1

Mikrofaservliese wurden hergestellt unter Verwendung eines Cycloolefinpolymers

25 ®TOPAS (Ticona GmbH, Frankfurt/ Deutschland) mit einem MVR von 28 ml/10min und einer HDT/B von 131°C.

Das Polymer wurde verarbeitet bei einem Temperaturprofil von <80°C/ 235°C/ 245°C/ 255°C/ Düse 265°C und unter verschiedenen Temperaturen und Drücken des Luftstromes.

Es wurde eine Reihe von MikrofaserVLiesen unterschiedlicher Faserstärke und unterschiedlichen Flächengewichtes erhalten.

Versuch Nr.	Flächengewicht [g/m <sup>2</sup> ]	Durchschnittlicher Faserdurchmesser [µm]	Lufttemperatur [°C]	Luftdruck [bar]
1-1	39	3,7	285	0,5
1-2	45	5	278	0,5
1-3	50	6,5	271	0,3
1-4	53	7	268	0,3
1-5	60	10	260	0,2

## Beispiel 2

MikrofaserVLiese wurden hergestellt unter Verwendung eines Cycloolefinpolymers ®TOPAS (Ticona GmbH, Frankfurt/ Deutschland) mit einer MVR von 28 ml/10min und einer HDT/B von 131°C.

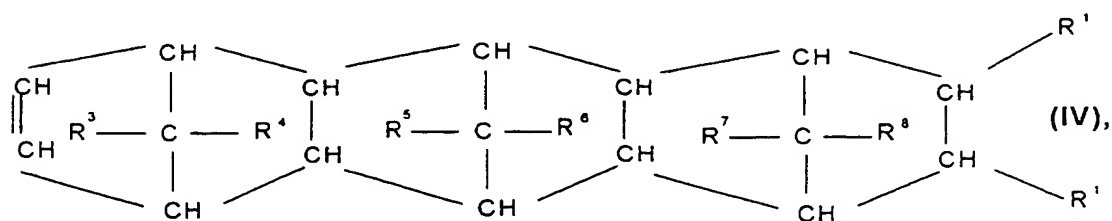
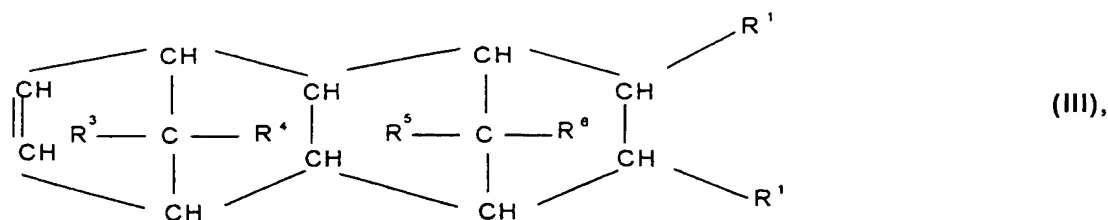
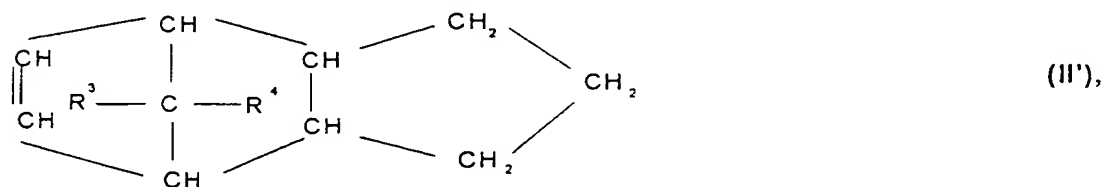
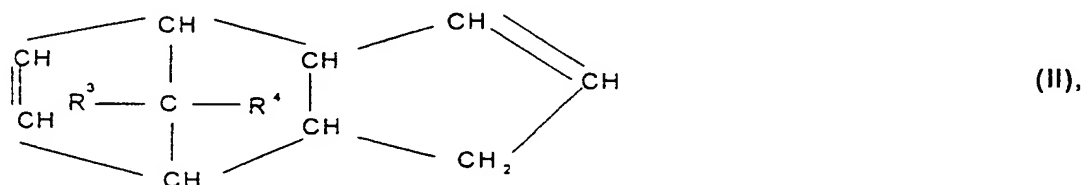
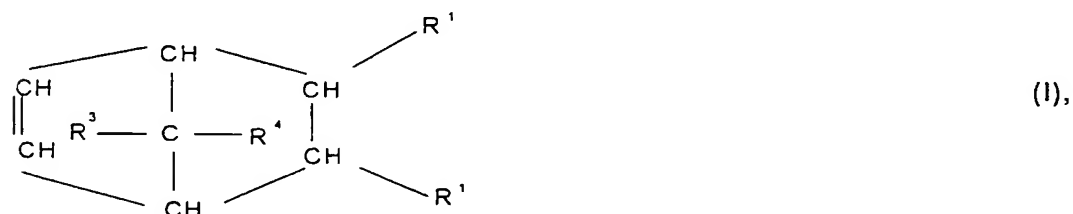
Das Polymer wurde verarbeitet bei einem Temperaturprofil von <80°C/ 245°C/ 255°C/ 265°C/ Düse 270°C und unter verschiedenen Temperaturen und Drücken des Luftstromes.

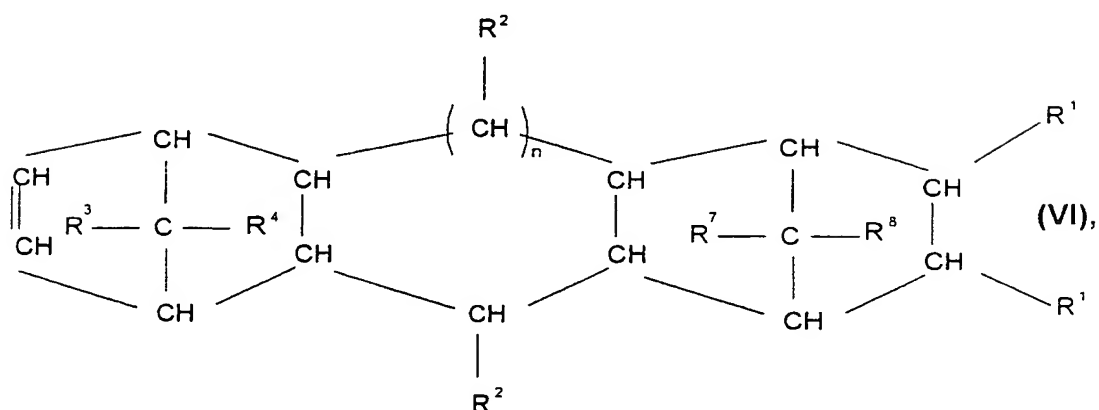
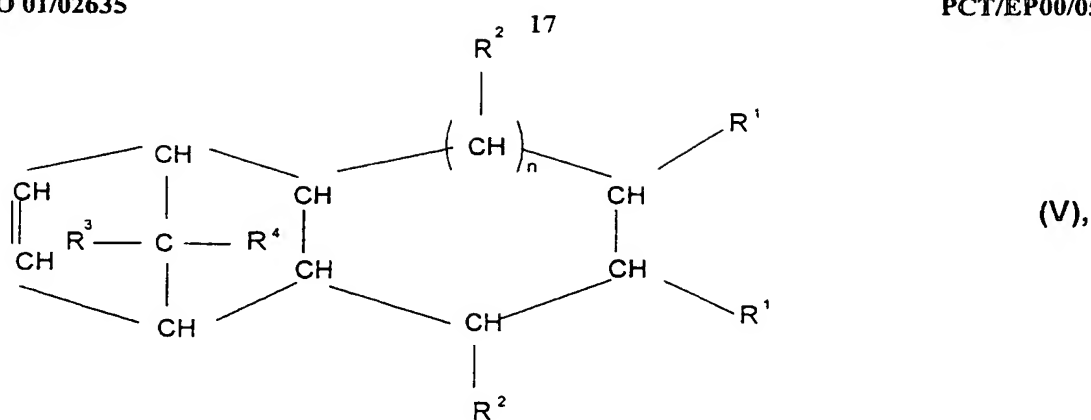
Es wurde eine Reihe von MikrofaserVLiesen unterschiedlicher Faserstärke und unterschiedlichen Flächengewichtes erhalten.

Versuch Nr.	Flächengewicht [g/m <sup>2</sup> ]	Durchschnittlicher Faserdurchmesser [µm]	Lufttemperatur [°C]	Luftdruck [bar]
2-1	18	1,9	294	0,7
2-2	26	2,8	290	0,6
2-3	32	3,1	283	0,6
2-4	43	4,7	275	0,5

# Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Mikrofaservliesen enthaltend mindestens ein Cycloolefinpolymer durch das Schmelzblas- (Melt blown-) Verfahren.
2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das Cycloolefinpolymer 0,1 - 100 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymers, polymerisierte Einheiten enthält, welche sich ableiten von mindestens einem polycyclischen Olefin der Formeln I, II, II', III, IV, V oder VI





worin R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> gleich oder verschieden sind und ein Wasserstoffatom oder einen C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffrest, wie einen linearen oder verzweigten C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylrest, C<sub>6</sub>-C<sub>18</sub>-Arylrest, C<sub>7</sub>-C<sub>20</sub>-Alkylenarylrest, einen cyclischen oder acyclischen C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>-Alkenylrest bedeuten, oder einen gesättigten, ungesättigten oder aromatischen Ring bilden, wobei gleiche Reste R<sup>1</sup> bis R<sup>8</sup> in den verschiedenen Formeln I bis VI eine unterschiedliche Bedeutung haben können, worin n Werte von 0 bis 5 annehmen kann, und 0 bis 99,9 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymers, polymerisierte Einheiten enthält, welche sich ableiten von einem oder mehreren acyclischen Olefinen der Formel VII



worin  $R^9$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  und  $R^{12}$  gleich oder verschieden sind und ein Wasserstoffatom, einen linearen, verzweigten, gesättigten oder ungesättigten  $C_1$ - $C_{20}$ -Kohlenwasserstoffrest wie einen  $C_1$ - $C_8$ -Alkylrest oder einen  $C_6$ - $C_{18}$ -Arylrest bedeuten, und 0 bis 45 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtzusammensetzung des Cycloolefinpolymers, polymerisierte Einheiten enthält, welche sich ableiten von einem oder mehreren monocyclischen Olefinen der Formel VIII,



worin m eine Zahl von 2 bis 10 ist.

3. Mikrofaservlies erhältlich nach Anspruch 1 oder 2.

4. Verwendung des Mikrofaservlieses nach Anspruch 3 als Ölabsorber, Filtermaterial oder Isolationsmaterial.

5. Verwendung des Mikrofaservlieses nach Anspruch 3 als Partikelfilter im Bereich der Raumlufte- und Reinraumtechnik, der Haustechnik, als Mikrofilter in Staubsaugern, als Pkw-Innenraumfilter sowie im Bereich Atemschutz, als partikelfiltrierende Atemmasken.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter: Application No  
PCT/EP 00/05760

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 7 D04H1/42 D04H1/56

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 D04H C08F B01D D01D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 08 041260 A (MITSUI PETROCHEM IND LTD) 13 February 1996 (1996-02-13) paragraphs '0122!', '0126!'-'0130!; claims 7,8	1-5
X	WO 96 23010 A (UNIV NORTH CAROLINA ;DU PONT (US)) 1 August 1996 (1996-08-01) claim 514	1,3
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1995, no. 02, 31 March 1995 (1995-03-31) & JP 06 330445 A (IDEMITSU KOSAN CO LTD), 29 November 1994 (1994-11-29) abstract	1,3
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

26 September 2000

Date of mailing of the international search report

09/10/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Barathe, R

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/05760

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>DE 44 29 165 A (HOECHST AG)  22 February 1996 (1996-02-22)  claims 1,6,7  -----</p>	1-5



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Inter application No

PCT/EP 00/05760

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 08041260 A	13-02-1996	NONE	
WO 9623010 A	01-08-1996	AU 5020896 A	14-08-1996
		BR 9607485 A	23-12-1997
		CA 2211108 A	01-08-1996
		CN 1181089 A	06-05-1998
		CZ 9702351 A	17-12-1997
		EP 0805826 A	12-11-1997
		FI 973096 A	23-09-1997
		JP 10513489 T	22-12-1998
		NO 973310 A	23-09-1997
		PL 322446 A	02-02-1998
		US 5880241 A	09-03-1999
		US 5880323 A	09-03-1999
		US 5866663 A	02-02-1999
		US 6034259 A	07-03-2000
		US 5886224 A	23-03-1999
		US 5891963 A	06-04-1999
		US 5916989 A	29-06-1999
		US 6107422 A	22-08-2000
JP 06330445 A	29-11-1994	NONE	
DE 4429165 A	22-02-1996	DE 59504747 D	18-02-1999
		WO 9604988 A	22-02-1996
		EP 0777526 A	11-06-1997
		JP 10505781 T	09-06-1998
		US 5853457 A	29-12-1998

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 D04H1/42 D04H1/56

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 D04H C08F B01D D01D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	JP 08 041260 A (MITSUI PETROCHEM IND LTD) 13. Februar 1996 (1996-02-13) Absätze '0122!,'0126!-'0130!; Ansprüche 7,8 ---	1-5
X	WO 96 23010 A (UNIV NORTH CAROLINA ;DU PONT (US)) 1. August 1996 (1996-08-01) Anspruch 514 ---	1,3
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1995, no. 02, 31. März 1995 (1995-03-31) & JP 06 330445 A (IDEMITSU KOSAN CO LTD), 29. November 1994 (1994-11-29) Zusammenfassung --- -/--	1,3



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

26. September 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

09/10/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Barathe, R

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>DE 44 29 165 A (HOECHST AG)  22. Februar 1996 (1996-02-22)  Ansprüche 1,6,7</p> <p>-----</p>	1-5

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zu einer Patentfamilie gehören

Intern. Aktenzeichen

PCT/EP 00/05760

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
JP 08041260	A	13-02-1996	KEINE		
WO 9623010	A	01-08-1996	AU	5020896 A	14-08-1996
			BR	9607485 A	23-12-1997
			CA	2211108 A	01-08-1996
			CN	1181089 A	06-05-1998
			CZ	9702351 A	17-12-1997
			EP	0805826 A	12-11-1997
			FI	973096 A	23-09-1997
			JP	10513489 T	22-12-1998
			NO	973310 A	23-09-1997
			PL	322446 A	02-02-1998
			US	5880241 A	09-03-1999
			US	5880323 A	09-03-1999
			US	5866663 A	02-02-1999
			US	6034259 A	07-03-2000
			US	5886224 A	23-03-1999
			US	5891963 A	06-04-1999
			US	5916989 A	29-06-1999
			US	6107422 A	22-08-2000
JP 06330445	A	29-11-1994	KEINE		
DE 4429165	A	22-02-1996	DE	59504747 D	18-02-1999
			WO	9604988 A	22-02-1996
			EP	0777526 A	11-06-1997
			JP	10505781 T	09-06-1998
			US	5853457 A	29-12-1998

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**